

Pengoptimuman Parameter Sonikasi dan Pengacauan Magnetik bagi Mendapatkan Penyerakan Sebati Komposit Kuprum-Grafin Berdasarkan Sifat Morfologi

(Optimization of Sonication and Magnetic Stirrer Parameter for Copper-Graphene Composite's Homogeneous Dispersion from Morphological Properties)

NOR NABILLA KADIMAN, JULIE ELVYANA ROMLI, NORHAMIDI MUHAMAD,
ABU BAKAR SULONG & FARHANA MOHD FOUZDI

ABSTRAK

Kajian mengenai grafin kini semakin meluas disebabkan sifat kebolehaliran terma yang mampu meningkatkan potensi bahan komposit. Penambahan grafin dalam matriks kuprum dikaji dengan menggunakan gabungan bahan pengikat iaitu polietilena glikol (PEG), polimetil metakrilat (PMMA) dan asid stearik. Penggunaan grafin sebagai bahan pengisi dalam matriks kuprum merupakan pendekatan baru yang bertujuan untuk meningkatkan kebolehaliran terma produk yang dihasilkan. Namun, penambahan grafin dalam matriks kuprum boleh menyebabkan ketidaksamarataan zarah komposit kerana penggumpalan zarah-zarah grafin. Oleh itu, kaedah sonikasi dan pengacauan magnetik semasa proses pra-campuran digunakan bagi menghasilkan bahan suapan yang sebati dan penyerakan grafin yang lebih baik tanpa penggumpalan. Suhu proses sonikasi telah ditetapkan pada 55°C dengan masa sonikasi yang berbeza iaitu 30 minit, 60 minit dan 90 minit. Bagi proses pengacauan magnetik, parameter yang digunakan adalah 55°C, selama 21 jam pada kelajuan yang berbeza iaitu 300, 350 dan 400 rpm. Analisis imej Pancaran Medan Mikroskopi Elektron Pengimbasan (FESEM) dan Pemetaan EDX telah dijalankan bagi mengkaji penyerakan grafin dalam komposit kuprum grafin. Keputusan menunjukkan hasil yang lebih baik diperolehi selepas proses sonikasi dan pengacauan magnetik dijalankan. Penyerakan terbaik yang lebih seragam dan sebati diperolehi pada masa sonikasi 60 min dan pengacauan magnetik pada kelajuan sederhana iaitu 350 rpm. Zarah grafin didapati kurang bertumpu pada satu tempat dan penggumpalan semula juga tidak berlaku. Penyerakan sebati ini menjadikan hubungan antara muka zarah-zarah grafin dan kuprum menjadi lebih baik seterusnya mampu mengurangkan keliangan bagi penghasilan jasad akhir.

Kata kunci: Grafin; komposit; kuprum; penyerakan; sonikasi

ABSTRACT

Currently, graphene is widely discussed among researchers due to its thermal flowability that can improve the properties of composite materials. This research used the addition of graphene in copper matrix with a combination of binders which are polyethylene glycol (PEG), polymethyl methacrylate (PMMA) and stearic acid. The use of graphene as a filler material in copper matrix is a new approach in enhancing the thermal conductivity of the product produced. However, the additions of graphene in copper matrix can produce uneven composite because of the agglomeration of graphene particles. Therefore, sonication and magnetic stirring methods during pre-mixing process were used to produce a uniform feedstock with a better dispersion of graphene with minimum agglomeration. Sonication process temperature was set at 55°C with different sonication duration which is 30, 60 and 90 min. For the magnetic stirring process, the parameters are 55°C for 21 h at different speeds such as 300, 350 and 400 rpm. Field Emission Scanning Electron Microscope (FESEM) and EDX Mapping were carried out to observe the dispersion of graphene in the copper graphene composites. It was found that, better results were obtained after sonication and magnetic stirring process conducted. The best dispersion with more uniform and homogeneous was obtained at 60 min sonication time and medium magnetic stirring speed at 350 rpm. Graphene particles were found less grouping and did not re-agglomerate. This homogeneous dispersion made the interface relationship between copper and graphene particles better and porosities for the fabrication of final parts reduced.

Keywords: Composite; copper; dispersion; graphene; sonication

PENGENALAN

Kini, grafin menjadi tumpuan para pengkaji kerana sifatnya yang pelbagai dan boleh diaplikasi dalam pelbagai bidang. Grafin merupakan satu lapisan sp² ikatan hibrid atom-atom karbon yang disusun dalam kekisi sarang madu

dua dimensi dengan setiap atom karbon tersebut terikat dengan tiga atom jiran karbon (Shah et al. 2015). Grafin mempunyai 200,000 cm²V⁻¹s⁻¹ kelincahan pembawa, 5000 Wm⁻¹K⁻¹ kekonduksian dan luas permukaan tertentu sekitar 2630 m²g⁻¹ yang menjadikan grafin berpotensi besar untuk

digunakan dalam aplikasi komposit, elektronik dan kegunaan dalam alat bersaiz nano (Ruffino et al. 2016).

Grafyn yang digunakan dalam kajian ini adalah *graphene nanoplatelets* (GNPs). GNPs terdiri daripada grafyn berbilang lapis yang disusun bersama dan mampu untuk menguatkan polimer dan meningkatkan kebolehaliran haba dan elektrik (Zhi & Huang 2016). Penggunaan GNPs melibatkan penggunaan serbuk bersaiz nano dalam menghasilkan peralatan elektronik berskala kecil. Namun begitu, daya Van Der Waals yang kuat antara kepingan grafyn membuatkan GNPs cenderung untuk bergumpal pada polimer matriks dan seterusnya mengakibatkan tumpuan tegasan (Guo et al. 2013). Penggumpalan tersebut boleh dielakkan dengan menggunakan pelarut organik dan memilih kaedah penyebaran yang sesuai (Atif & Inam 2016).

Kaedah yang biasa dilakukan dalam penyebaran GNPs ialah kaedah fizikal dan kaedah kimia. Kaedah fizikal melibatkan pengacauan mekanikal, pengisar bebola dan rawatan ultrasonik manakala kaedah kimia melibatkan pengubahsuaian kovalen dan pengubahsuaian bukan kovalen. Kaedah yang digunakan dalam kajian ini ialah sonikasi dan pengacauan magnetik yang melibatkan kaedah fizikal dan kimia. Kaedah sonikasi menggunakan larutan alkohol telah dijalankan oleh Chen et al. (2016) bagi penyerakan grafyn. Namun, kaedah sonikasi yang dijalankan memerlukan siri proses yang panjang kerana menggunakan larutan yang berbeza dan memerlukan tapisan dan cucian semula. Kaedah sonikasi dan pengacauan magnetik menggunakan air suling telah dijalankan dan dilaporkan dalam kajian terdahulu oleh Azaman et al. (2016) namun tiada sebarang pengoptimuman dijalankan. Proses sonikasi boleh menghasilkan tekanan tinggi dan rendah berselang-seli yang menghasilkan buih yang banyak di dalam cecair. Buih-buih ini akan mengembang dan pecah disekeliling grafyn semasa proses sonikasi seterusnya cecair mikro-jet akan bertindak ke atas permukaan grafyn bagi menghasilkan daya ricih. Kekuatan ricih cecair tersebut boleh membantu mengawal daya tarikan lapisan dalaman antara lapisan grafyn, mengurangkan ketebalan lapisan grafyn, meningkatkan kawasan permukaan tertentu dan mengurangkan penggumpalan grafyn dengan lebih berkesan (Wang & Zhao 2016). Melalui kajian ini, parameter sonikasi dan pengacauan magnetik telah dipelbagaikan bagi memperoleh parameter optimum dengan penggumpalan minimum.

BAHAN DAN METOD

Bahan-bahan yang digunakan dalam kajian ini adalah serbuk kuprum sebagai bahan utama, serbuk GNPs sebagai bahan pengisi dan *polyethylene glycol* (PEG), *polymethyl methacrylate* (PMMA) serta asid stearik sebagai bahan pengikat. Saiz kuprum yang digunakan dalam kajian ini adalah 22 μm manakala saiz GNPs yang digunakan mempunyai saiz purata 15 mikron.

Komposisi bahan-bahan ini diperoleh berdasarkan kajian terdahulu yang menggabungkan beberapa siri keputusan dan parameter yang optimum. Ini bertujuan memfokuskan kajian ini kepada penyediaan dan pra-campuran bahan yang mempunyai pelbagai parameter proses pencampuran. Komposisi bahan campuran yang digunakan ialah 58 vol.% bahan serbuk yang terdiri daripada 0.5 vol.% serbuk grafyn dan 42 vol.% bahan pengikat. Berat bahan yang digunakan ialah 181.89 g serbuk kuprum, 0.39 g serbuk grafyn, 12.94 g PEG, 4.43g PMMA dan 0.35g asid stearik. Penyediaan bahan suapan menggabungkan proses pra-campuran dan proses campuran. Proses pra-campuran ini melibatkan proses sonikasi dan pengacauan magnetik bagi menghasilkan serakan grafyn yang seragam dan sehati.

Proses pra-campuran melibatkan proses sonikasi dan pengacauan magnetik. Sonikasi merupakan teknik yang digunakan untuk menyerakkan zarah nano. Oleh itu, proses sonikasi digunakan untuk menggodak zarah-zarah GNPs bagi memastikan ia tidak bergumpal dan seterusnya memudahkan pencampuran dengan zarah-zarah kuprum. Proses sonikasi ini dijalankan dengan memasukkan 0.39 g serbuk grafyn ke dalam 250 mL air suling di dalam bikar. Bikar ini kemudian diletakkan di dalam mesin sonikasi mengikut parameter yang telah ditetapkan, iaitu pada suhu 55°C dan masa sonikasi yang berbeza iaitu 30, 60 dan 90 minit. Selepas proses sonikasi, campuran yang telah disonikasi dikacau menggunakan pengacau magnetik. Semasa proses pengacauan magnetik tersebut, 12.94 g PEG telah dimasukkan sedikit demi sedikit ke dalam campuran. Parameter yang terlibat sewaktu proses pra-campuran ialah suhu, kelajuan pengacau dan masa pengacau. Suhu telah ditetapkan pada 55°C, masa pengacau 21 jam dengan kelajuan pengacau yang berbeza-beza iaitu 300, 350 dan 400 rpm.

Proses pencampuran telah dijalankan menggunakan mesin pencampur Brabender. Bahan-bahan hasil proses pra-campuran telah dicampur dengan 181.89 g serbuk kuprum, 4.43 g PMMA, dan 0.35 g asid stearik. Parameter yang digunakan dalam proses pencampuran ialah suhu pencampuran 150°C, kelajuan pencampuran 40 rpm dan masa pencampuran selama satu jam. Penyediaan bahan suapan tanpa proses sonikasi dan pengacauan magnetik turut dilakukan supaya keputusan bahan suapan antara proses pra-campuran dan tanpa proses pra-campuran dapat dibandingkan. Bagi proses pencampuran bahan tanpa proses sonikasi, parameter yang sama telah dijalankan menggunakan mesin pencampur Brabender.

KEPUTUSAN DAN PERBINCANGAN

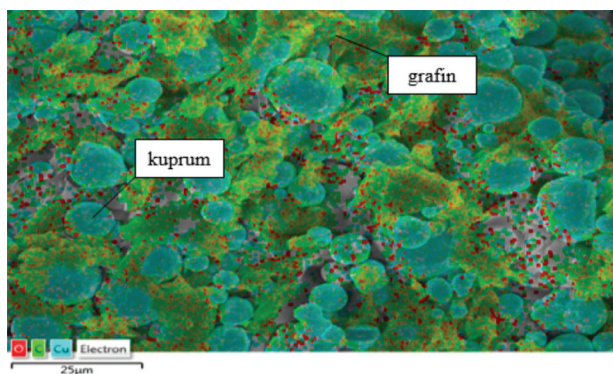
Analisis morfologi telah dijalankan selepas penyediaan bahan suapan menggunakan *Medan Mikroskopi Elektron Pengimbasan* (FESEM) dan Pemetaan EDX bagi mengkaji penyerakan zarah kuprum grafyn. Analisis morfologi turut dijalankan ke atas bahan suapan yang melalui dan tidak melalui proses pra-campuran.

KAJIAN MORFOLOGI BAHAN SUAPAN TANPA PROSES PRA-CAMPURAN

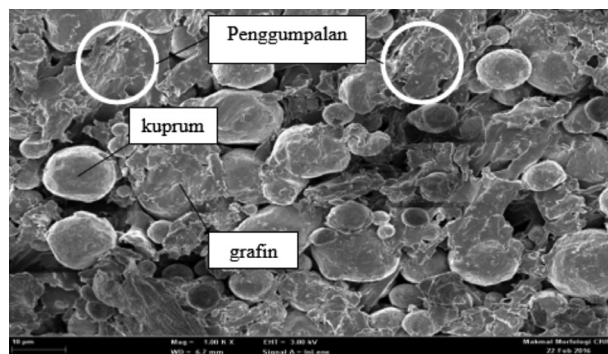
Rajah 1 menunjukkan imej Pemetaan EDX bahan suapan tanpa proses pra-campuran dengan pembesaran imej 25 μm . Penyerakan grafिन ditandakan dengan warna hijau manakala penyerakan kuprum ditandakan dengan warna putih dalam imej Pemetaan EDX. Berdasarkan kedua-dua rajah ini, didapati penyerakan zarah-zarah grafिन dilihat tidak begitu baik. Zarah-zarah grafिन kelihatan terasing daripada matriks kuprum dan grafिन bergumpal di antara zarah-zarah kuprum menjadikan ikatan antara muka zarah-zarah menjadi lemah. Rajah 2 menunjukkan imej FESEM bahan suapan tanpa proses pra-campuran dengan pembesaran imej 10 μm . Penyerakan grafिन dan kuprum telah dilabelkan seperti dalam rajah. Penggumpalan grafिन boleh dilihat pada bulatan yang menunjukkan zarah-zarah grafिन tidak diserakkan sepenuhnya.

KAJIAN MORFOLOGI PADA MASA SONIKASI YANG BERBEZA
Semasa proses sonikasi, grafिन telah dilarutkan di dalam air suling dengan menggunakan mesin sonikasi pada masa sonikasi yang berbeza iaitu 30, 60 dan 90 minit. Masa sonikasi yang berbeza digunakan untuk memperoleh parameter optimum dan kesan sonikasi.

Rajah 3 menunjukkan imej Pemetaan EDX penyerakan grafिन bagi bahan suapan kuprum grafिन pada kelajuan sonikasi dan pengacauan yang sama iaitu 350 rpm, suhu pengacau yang sama iaitu 55°C tetapi masa sonikasi yang berbeza iaitu (a) 30 minit, (b) 60 minit dan (c) 90 minit.



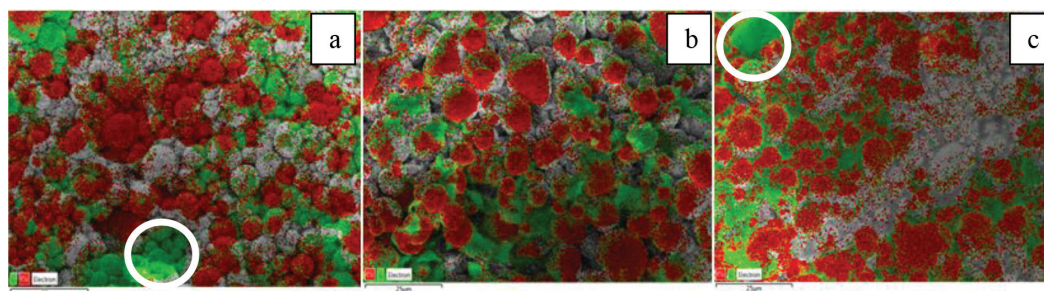
RAJAH 1. Imej Pemetaan EDX bagi bahan suapan tanpa proses pra-campuran



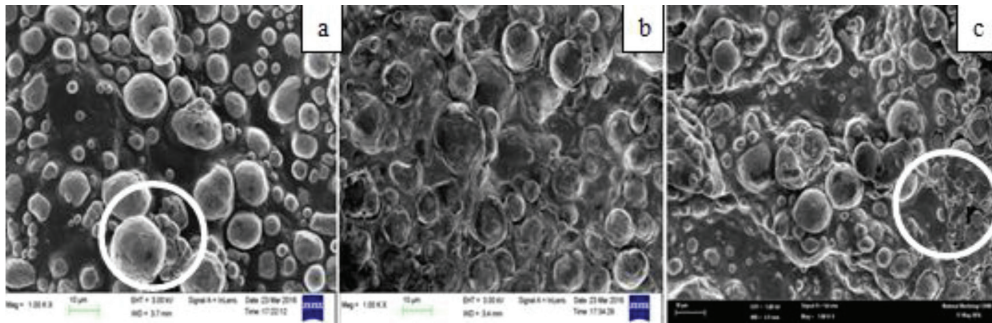
RAJAH 2. Imej FESEM bagi bahan suapan tanpa proses pra-campuran

Bulatan putih dalam Rajah 3(a) menunjukkan penyerakan grafिन berlaku dalam bentuk penggumpalan dengan ikatan antara muka zarah-zarah grafिन pada matriks kuprum yang rendah. Zarah-zarah grafिन mempunyai ikatan yang lemah dan keliangan yang tinggi maka penggumpalan yang besar akan mengakibatkan sifat mekanikal yang rendah (Frmyr et al. 2012). Menurut Muhsan et al. (2013), zarah-zarah yang bergumpal akan meningkatkan kadar keliangan komposit yang dihasilkan dan mengurangkan ciri-ciri yang dikehendaki. Sementara itu, Rajah 2(b) menunjukkan penyerakan zarah-zarah grafिन dalam matriks kuprum lebih baik dengan zarah-zarah grafिन kurang bergumpal dan mula berserakan di sekeliling zarah-zarah kuprum. Manakala Rajah 2(c) menunjukkan zarah-zarah grafिन berserakan dengan baik dan berada di sekitar zarah-zarah kuprum walaupun terdapat sedikit penggumpalan grafिन seperti yang ditandakan oleh bulatan putih. Penyerakan grafिन bergantung hampir sepenuhnya kepada masa sonikasi. Bagi penyerakan yang baik tanpa memberikan kesan keatas struktur grafिन, masa yang digunakan hendaklah tidak terlalu lama manakala masa yang terlalu rendah pula tidak memberikan penyerakan yang cukup. Ini kerana masa sonikasi selama 60 minit didapati mencukupi untuk penyerakan zarah-zarah grafिन.

Rajah 4 menunjukkan imej FESEM dengan masa sonikasi 30, 60 dan 90 minit dengan pembesaran imej 10 μm . Rajah 4(a) menunjukkan matriks kuprum tidak mempunyai sebarang ikatan dengan zarah-zarah grafिन. Terdapat gumpalan kecil grafिन melekat pada matriks kuprum yang ditandakan dengan bulatan putih. Ini



RAJAH 3. Imej Pemetaan EDX pada masa sonikasi yang berbeza; (a) 30 minit (b) 60 minit dan (c) 90 minit



RAJAH 4. Imej FESEM pada masa sonikasi yang berbeza; a) 30 minit b) 60 minit dan c) 90 minit

menunjukkan pencampuran yang terhasil antara kuprum dan grafin tidak begitu baik. Rajah 4(b) pula menunjukkan pencampuran yang sebatu antara kuprum dan grafin dengan gumpalan zarah-zarah grafin tidak kelihatan dan zarah-zarah grafin dapat dilihat dengan jelas bergabung secara rata dengan matriks kuprum. Rajah 4(c) pula menunjukkan serakan adalah lebih baik berbanding rajah 4(a) walaupun masih terdapat penggumpalan grafin seperti yang ditandakan dalam bulatan. Selain itu, Rajah 4(c) turut menunjukkan zarah-zarah grafin dan zarah-zarah kuprum berkumpul khususnya pada bahagian tengah imej disebabkan oleh input tenaga berlebihan seterusnya mengakibatkan penggumpalan semula. Input tenaga yang berlebihan berpotensi membentuk semula penggumpalan dan penumpuan kelompok zarah yang sebelum ini berpecah serta mendorong pelbagai perubahan kimia pada permukaan bahan (Taurozzi et al. 2011).

KAJIAN MORFOLOGI PADA KELAJUAN PENGACAUAN MAGNETIK YANG BERBEZA

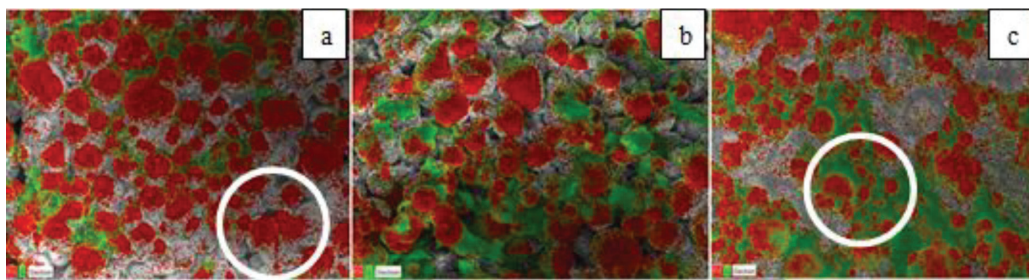
Rajah 5 menunjukkan imej Pemetaan EDX kelajuan pengacau magnetik yang berbeza iaitu 300, 350 dan 400 rpm selama 60 minit dengan pembesaran imej $25 \mu\text{m}$. Kelajuan pengacau magnetik mempengaruhi penyerakan grafin kerana wujudnya daya ricih melalui pergerakan pengacau. Pengacau magnetik bertindak dengan cekap bagi tujuan pelarutan dengan masa pengacau magnetik dapat dikurangkan dalam menghasilkan larutan yang sebatu. Penyerakan yang lebih baik juga boleh diperolehi dengan pengacauan yang intensif disebabkan oleh geseran dan mekanisma pegangan (Ma et al. 2010).

Rajah 5(a) menunjukkan zarah-zarah grafin kelihatan bergumpal dan tertumpu kepada satu kawasan. Selain itu, bulatan putih menunjukkan terdapat bahagian yang tidak diselaputi zarah-zarah grafin. Ini bermakna zarah-zarah grafin tidak melekat dengan baik pada matriks kuprum. Rajah 5(b) menunjukkan zarah-zarah grafin kelihatan berserakan dan menyelaputi matriks kuprum. Serakan zarah grafin pada matriks kuprum dilihat lebih baik dan serasi berbanding Rajah 5(a), manakala Rajah 5(b) menunjukkan penggumpalan zarah-zarah grafin yang boleh dilihat dengan jelas dalam bulatan putih. Keadaan ini adalah fenomena penggumpalan semula zarah-zarah ini disebabkan input tenaga yang berlebihan.

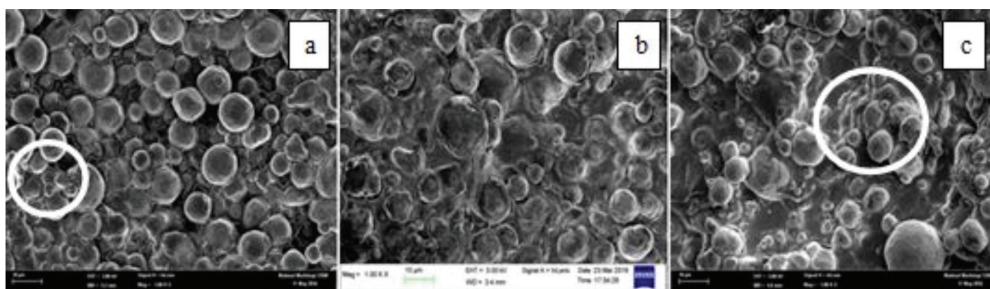
Rajah 6 menunjukkan imej FESEM pada kelajuan pengacauan magnetik 300, 350 dan 400 rpm dengan pembesaran imej $10 \mu\text{m}$. Rajah 6(a) menunjukkan zarah-zarah grafin tidak kelihatan berada pada matriks kuprum. Bulatan menunjukkan kewujudan gumpalan zarah-zarah grafin. Rajah 6(b) menunjukkan imej FESEM dengan kelajuan pengacauan magnetik 350 rpm. Zarah-zarah grafin kelihatan sebatu pada matriks kuprum berbanding Rajah 6(a). Rajah 6(c) menunjukkan zarah-zarah grafin melekat pada matriks kuprum. Namun, terdapat juga matriks kuprum yang bergumpal seperti dalam bulatan putih dan kelihatan juga matriks kuprum yang tidak diselaputi zarah-zarah grafin dengan baik.

KESIMPULAN

Kajian menggunakan kaedah sonikasi dan pengacauan magnetik bagi menyerakkan zarah-zarah grafin dengan



RAJAH 5. Imej Pemetaan EDX pada kelajuan pengacau magnetik yang berbeza; (a) 300 rpm, (b) 350 rpm dan (c) 400 rpm



RAJAH 6. Imej FESEM pada kelajuan pengacauan magnetik yang berbeza; a) 300 rpm, b) 350 rpm dan c) 400 rpm

pengumpulan minima berjaya dijalankan. Melalui analisis morfologi menggunakan FESEM dan Pemetaan EDX, penyerakan kuprum dan grafin menunjukkan keputusan yang baik setelah melalui proses sonikasi dan pengacauan magnetik. Penyerakan yang lebih seragam dan lebih baik diperoleh apabila masa sonikasi yang sederhana lama digunakan iaitu 60 minit. Keputusan yang lebih baik juga diperoleh apabila pengacauan magnetik dengan kelajuan sederhana laju digunakan iaitu 350 rpm dengan zarah-zarah grafin didapati berselerak di sekitar matriks kuprum dan kurang tertumpu pada satu tempat. Pengumpulan semula zarah-zarah grafin juga tidak berlaku pada masa sonikasi selama 60 minit dan kelajuan pengacau magnetik pada 350 rpm menunjukkan tiada input tenaga berlebihan. Ini menyebabkan hubungan antara muka zarah-zarah grafin dan kuprum menjadi lebih baik serta mengurangkan kadar keliangan.

PENGHARGAAN

Penulis ingin memberi penghargaan kepada Universiti Kebangsaan Malaysia untuk sokongan kewangan melalui geran No. TRGS/2/2014/UKM/02/4/1 dan FRGS/1/2013/TK04/UKM/01/2.

RUJUKAN

- Atif, R. & Inam, F. 2016. Reasons and remedies for the agglomeration of multilayered graphene and carbon nanotubes in polymers. *Beilstein Journal of Nanotechnology* 7(1): 1174-1196.
- Azaman, N.E., Raza, M.R., Muhamad, N., Akhtar, M.N., Sulong, A.B. 2016. Rheological study of copper and copper graphene feedstock for powder injection molding. *Journal of Physics: Conference Series* 790(1).
- Chen, F., Ying, J., Wang, Y., Du, S., Liu, Z. & Huang, Q. 2016. Effects of graphene content on the microstructure and properties of copper matrix composites. *Carbon* 96(November): 836-842.
- Frmr, T.R., Hansen, F.K. & Olsen, T. 2012. The optimum dispersion of carbon nanotubes for epoxy nanocomposites: Evolution of the particle size distribution by ultrasonic treatment. *Journal of Nanotechnology* 2012: Article ID. 545930.
- Guo, Z., Ran, S. & Fang, Z. 2013. Promoting dispersion of graphene nanoplatelets in polyethylene and chlorinated polyethylene by Friedel-Crafts reaction. *Composites Science and Technology* 86: 157-163.
- Ma, P.C., Siddiqui, N.A., Marom, G. & Kim, J.K. 2010. Dispersion and functionalization of carbon nanotubes for polymer-based nanocomposites: A review. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing* 41(10): 1345-1367.
- Muhsan, A.S., Ahmad, F., Mohamed, N.M., Megat Yusoff, P.S.M. & Rafi Raza, M. 2013. Uniform dispersion of multiwalled carbon nanotubes in copper matrix nanocomposites using metal injection molding technique. *International Journal of Manufacturing Engineering* 2013(November 2015): 1-9.
- Ruffino, F., Meli, G. & Grimaldi, M.G. 2016. Nanoscale electrical characteristics of metal (Au, Pd)-graphene-metal (Cu) contacts. *Solid State Communications* 225(JANUARY): 1-6.
- Shah, R., Kausar, A. & Muhammad, B. 2015. Exploration of polythiophene/graphene, poly(methyl methacrylate)/graphene and polythiophene-co-poly(methyl methacrylate)/graphene nanocomposite obtained via *in-situ* technique. *Journal of Plastic Film and Sheeting* 31(2): 144-157.
- Taurozzi, J.S., Hackley, V.A. & Wiesner, M.R. 2011. Ultrasonic dispersion of nanoparticles for environmental, health and safety assessment--issues and recommendations. *Nanotoxicology* 5(4): 711-729.
- Wang, B. & Zhao, R. 2016. A review on the dispersion of graphene in aqueous solution. *Sciprints*. doi. 10.20944/preprints201609.0036.v1.
- Zhi, M. & Huang, W. 2016. Curing kinetics, mechanical properties and thermal stability of epoxy/graphene nanoplatelets (GNPs) powder coatings. *Journal of Wuhan University of Technology-Mater. Sci. Ed.* 31(5): 1155-1161.

Jabatan Kejuruteraan Mekanik dan Bahan
Fakulti Kejuruteraan dan Alam Bina
Universiti Kebangsaan Malaysia
43600 UKM Bangi, Selangor Darul Ehsan
Malaysia

*Pengarang untuk surat-menyurat; email: nabillakadiman@gmail.com

Diserahkan: 7 November 2017

Diterima: 9 Disember 2017